



TITLE:

# 変位型強誘電体における音波の減衰定数、振動数の異常性について

AUTHOR(S):

谷, 憲輔; 津田, 直行

---

CITATION:

谷, 憲輔 ...[et al]. 変位型強誘電体における音波の減衰定数、振動数の異常性について. 物性研究 1967, 8(1): 39-56

ISSUE DATE:

1967-04-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/86020>

RIGHT:

# 変位型強誘電体における音波の減衰定数、 振動数の異常性について<sup>\*)</sup>

谷 憲 輔、 津 田 直 行 (京大理)

(3月22日受理)

## § I Introduction

W. Cochran 等<sup>(1)~(5)</sup>は; perovskite structure をもつ displaced 型強誘電体においては、soft ferroelectric mode と呼ばれる横波のある特定の光学的振動数  $\omega_T$  が、Lyddane-Sachs-Teller の式及び static dielectric constant  $\epsilon_0 \rightarrow \infty$  から予想されるように、絶対温度  $T$  が paraelectric Curie point  $T_0$  に向つて減少するにつれて減少し、ferroelectric phase になると共に、dispersion curve  $\omega_T-k$  ( $k$ : 波数) が  $k$  軸を切ること、及び ferroelectric phase ではこの mode に固有なイオンの変位が凍結している; と赤外吸収その他の実験から予想した。P.W. Anderson<sup>(6)</sup> はこの変位型強誘電性出現に対して lattice dynamics の観点から定性的理論を与えた。即ち potential 展開の fourth order を effective に second order に繰り込み、且つ古く Heller-Marcus<sup>(7)</sup> によつて与えられた dipole-dipole 相互作用の効果を考えると、これが short range な repulsive force の一部と打消し合つて temperature dependent な soft mode が帰結することを提言した。cubic strontium titanate に対して B.D. Silverman<sup>(8)</sup> は、この Anderson の考えにそつた具体的な次元 model を提案し、G. Rupprecht-R. Bell の microwave losses の実験<sup>(9)</sup> 事実の説明を与えた。

soft mode の frequency が  $T_0$  近傍で 0 に近くなるとその振巾が異常に

---

<sup>\*)</sup>本稿の結果の一部は、1967年1月物性研で行われた強誘電体の相転移研究会の懇親会で著者の一人(K.T.)によつて、報告された。

大きくなり、接触系である acoustic mode も phonon-phonon 相互作用を通じてこの異常性を感じることが予期される。我々は、Silverman model が一次元的であるが本質をとらえているように思えるのでこの model を採用し、displaced 型強誘電体における（超）音波の減衰定数、振動数、の  $T_0$  近傍における異常性の可能性を調べたのでここに報告する。§ II では Silverman model を説明し、§ III で Silverman の方法を改良した方法で、波数  $k$  をもつ音波の減衰定数  $\gamma_k^a$  及び振動数のずれ  $\Delta\omega_k^a$  を求める。§ IV で soft mode の dispersion を論ずる。§ V で我々の得た結果を列挙する。

## § II Model

以下、Silverman model<sup>(8)</sup> を説明する。displaced 型強誘電体  $ABO_3$  (A : +2 価、B : +4 価) を考える。B イオンと O イオンが couple しており、O イオンは単位胞面に垂直方向に動き、B イオンは任意方向に動くけれども shear-force は無視するものとする。A イオンは固定しており、B, O イオンの空間的運動を規定するものとする。簡単のために B イオンと O イオンの mass は等しくとり reduced mass にしておき、単位イオン当りの charge 数も符号を除いて等しいものとする。

次図はイオンが変位する displaced 型強誘電体を示す。

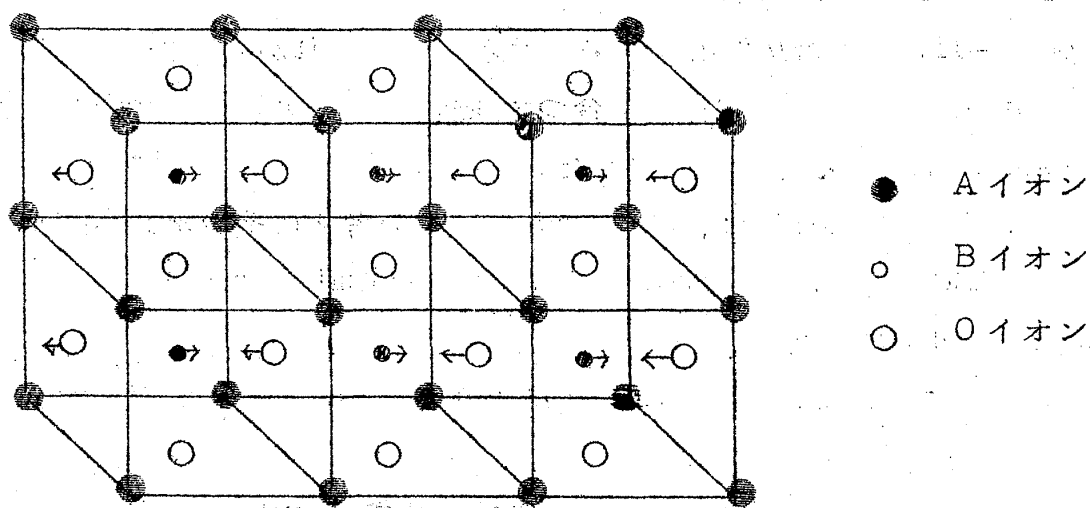


Fig. 1

[100] 方向の chain の energy は次式で与えられる。

$$H = H_0 + H_{\text{anh}}^{(3)} + H_{\text{anh}}^{(4)} + H_{\text{d-d}} \quad (1)$$

$$H_0 \equiv \frac{1}{2} m \sum_{j=0}^{N-1} \{ \dot{x}_{(2j+1)}^2 + \dot{u}_{(2j+2)}^2 \} + \frac{1}{2} K \sum_{j=0}^{N-1} \{ (x_{(2j+1)} - u_{(2j)})^2 + (x_{(2j+1)} - u_{(2j+2)})^2 \}$$

$$H_{\text{anh}}^{(3)} \equiv \frac{1}{3} \alpha \sum_{j=0}^{N-1} \{ (x_{(2j+1)} - u_{(2j)})^3 - (x_{(2j+1)} - u_{(2j+2)})^3 \}$$

$H_{\text{anh}}^{(4)}$   $\equiv$  4 次の anharmonic term,  $H_{\text{d-d}}$   $\equiv$  dipole-dipole 相互作用  
 $x_j$  と  $u_j$  : それぞれ  $j$  番目の O イオンと B イオンの平衡位置からの変位  
 $m$  : イオンの reduced mass

$K, \alpha$  : nearest neighbor ions 間のそれぞれ second order-, third order-coupling constant

ここでは 3 次の anharmonic term まで explicit にかいた。

lattice constant を  $2d$  として  $x/d, u/d \ll 1$  であるから、4 次よりむしろ ..... 3 次の anharmonic term が damping 及び shift に本質的役割を果たす。 $T_0$  近傍では、soft mode の振巾が異常に大きくはなるが、後にみるようにそれは  $\sqrt{T-T_0}$  に比例しているから、物理的に意味のある  $T_0$  近傍では、 $x/d, u/d \ll 1$  を変えることはない。簡単のために以下 § III では、先ず  $H_{\text{anh}}^{(4)}$  及び  $H_{\text{d-d}}$  を無視して議論を進める。§ IV で  $H_{\text{anh}}^{(4)}$ ,  $H_{\text{d-d}}$  の効果を論ずる。それは、§ III の結果で optical mode に temperature dependence をもたすこと及びその dispersion を変えることに入ってくる。

### § III Anharmonic damping, $r_k^a$ 及び $\Delta\omega_k^a$

次の complex normal coordinate を導入する。

$$x_j = (2Nm)^{-1/2} \sum_k (q_k^a - q_k^0) e^{ik \cdot X_j^0} \quad (2)$$

$$u_j = (2Nm)^{-1/2} \sum_k (q_k^a + q_k^0) e^{ik \cdot U_j^0}$$

ここで

$X_j^0$  と  $U_j^0$  : それぞれ O イオンと B イオンの平衡位置

(2) を用いて Hamiltonian (1) は次のようになる。

$$H = H_0 + H_{anh} \quad (3)$$

$$H_0 = \frac{1}{2} \sum_k [p_k^a p_{-k}^a + (\omega_k^a)^2 q_k^a q_{-k}^a] + \frac{1}{2} \sum_k [p_k^0 p_{-k}^0 + (\omega_k^0)^2 q_k^0 q_{-k}^0]$$

$$\omega_k^a = \left(\frac{4K}{m}\right)^{1/2} \sin \frac{|k| \cdot d}{2}, \quad \omega_k^0 = \left(\frac{4K}{m}\right)^{1/2} \cos \frac{k \cdot d}{2}$$

$$H_{anh}^{(3)} = \frac{2\alpha N}{(2Nm)^{3/2}} \sum_{k, k', k''} [q_k^a q_{k'}^a q_{k''}^a (e^{ik \cdot d} - c.c.) + q_k^a q_{k'}^0 q_{k''}^0 \cdot (e^{ikd} - e^{ik'd} - e^{ik''d} - c.c.)] \delta(k+k'+k'')$$

次の変換で相互作用表示に移す。

$$\begin{aligned} \mathcal{U} &= e^{iH_0' t/\hbar} (H - H_0') e^{-iH_0' t/\hbar} \\ &= e^{iH_0' t/\hbar} H e^{-iH_0' t/\hbar} - H_0' \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} H_0' &= \sum_{k' \neq k} a_k^{a*} a_{k'}^a \cdot \frac{\hbar \omega_{k'}^a}{2} + \sum_{k' \neq -k} a_{-k}^{a*} a_{-k'}^a \cdot \frac{\hbar \omega_{k'}^a}{2} + \sum_{k'} \frac{\hbar \omega_{k'}^a}{2} \\ &\quad + \sum_{k'} (a_k^{0*} a_{k'}^0 + a_{-k}^{0*} a_{-k'}^0 + 1) \cdot \frac{\hbar \omega_{k'}^0}{2} \end{aligned}$$

ここで次の Boson creation, annihilation operator  $a_k^{\alpha*}, a_k^{\alpha}$  を導入した。

$$\begin{aligned} q_k^{\alpha} &= \left(\frac{\hbar}{2\omega_k^{\alpha}}\right)^{1/2} \cdot (a_k^{\alpha} + a_{-k}^{\alpha*}) \\ q_k^{\alpha} &= -i \left(\frac{\hbar \omega_k^{\alpha}}{2}\right)^{1/2} \cdot (a_{-k}^{\alpha} - a_k^{\alpha*}) \end{aligned} \quad (\alpha = a \text{ or } 0) \quad (5)$$

$$\mathcal{U} = a_k^{a*} a_k^a \cdot \hbar \omega_k^a$$

$$\begin{aligned}
 & + \frac{2\alpha}{\sqrt{N}} \cdot \left(\frac{\hbar}{4m}\right)^{3/2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{k}''} [(\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^a \omega_{\mathbf{k}''}^a)^{-1/2} (a_{\mathbf{k}}^a e^{-i\omega_{\mathbf{k}}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}}^{a*} e^{i\omega_{\mathbf{k}}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}+\mathbf{k})]}) \times \\
 & \times (a_{\mathbf{k}'}^a e^{-i\omega_{\mathbf{k}'}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}'-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}'}^{a*} e^{i\omega_{\mathbf{k}'}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}'+\mathbf{k})]}) \\
 & (a_{\mathbf{k}''}^a e^{-i\omega_{\mathbf{k}''}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}''-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}''}^{a*} e^{i\omega_{\mathbf{k}''}^a t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}''+\mathbf{k})]}) \times \\
 & \times (e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{d}} - \text{c. c.}) \\
 & + (\omega_{\mathbf{k}}^0 \omega_{\mathbf{k}'}^0 \omega_{\mathbf{k}''}^0)^{-1/2} (a_{\mathbf{k}}^0 e^{-i\omega_{\mathbf{k}}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}}^{0*} e^{i\omega_{\mathbf{k}}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}+\mathbf{k})]}) \times \\
 & \times (a_{\mathbf{k}'}^0 e^{-i\omega_{\mathbf{k}'}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}'-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}'}^{0*} e^{i\omega_{\mathbf{k}'}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}'+\mathbf{k})]}) \\
 & \times (a_{\mathbf{k}''}^0 e^{-i\omega_{\mathbf{k}''}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}''-\mathbf{k})]} + a_{-\mathbf{k}''}^{0*} e^{i\omega_{\mathbf{k}''}^0 t \cdot [1-\Delta(\mathbf{k}''+\mathbf{k})]}) \times \\
 & \times (e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{d}} - e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{d}} - e^{i\mathbf{k}'' \cdot \mathbf{d}} - \text{c. c.})] \Delta(\mathbf{k} + \mathbf{k}' + \mathbf{k}'')
 \end{aligned} \tag{6}$$

以下 Silverman が microwave losses を計算した方法<sup>(8)</sup>を、改良した簡潔なやり方で求める。Silverman のように時間について2階微分まで計算する必要はない。

acoustic phonon の damping 及び frequency shift を求めるためには次のように考えればよい。まず  $r_{\mathbf{k}}^a$  と  $\Delta\omega_{\mathbf{k}}^a$  が求まったとすると

$$a_{\mathbf{k}}^{a*} = a_{\mathbf{k}}^{a*}(0) e^{i\omega_{\mathbf{k}}^a t - r_{\mathbf{k}}^a t + i\Delta\omega_{\mathbf{k}}^a t} \tag{7}$$

従つて

$$i\hbar \dot{a}_{\mathbf{k}}^{a*} = -\hbar\omega_{\mathbf{k}}^a \cdot a_{\mathbf{k}}^{a*} - i\hbar \cdot (r_{\mathbf{k}}^a - i\Delta\omega_{\mathbf{k}}^a) a_{\mathbf{k}}^{a*} \tag{8}$$

を得る。従つて

$$i\hbar \dot{a}_{\mathbf{k}}^{a*} = [a_{\mathbf{k}}^{a*}, \mathcal{H}] \tag{9}$$

から上式(7)の  $r_{\mathbf{k}}^a$  及び  $\Delta\omega_{\mathbf{k}}^a$  に当る部分を抽出すればそれぞれ damping constant, frequency shift が得られるわけである。

(9)は次のようになる。

谷・津田

$$i\hbar \dot{a}_k^{a*} = -\hbar \omega_k^a \cdot a_k^{a*} - f \quad (10)$$

$$\begin{aligned} f = & \frac{2\alpha}{\sqrt{N}} \cdot \left(\frac{\hbar}{4m}\right)^{3/2} \sum_{k', k''} \times \\ & \times [(\omega_k^a \omega_{k'}^a \omega_{k''}^a)^{-1/2} (a_{k'}^a e^{-i\omega_{k'}^a t \cdot [1-\Delta(k-k)]} + a_{-k'}^{a*} e^{i\omega_{k'}^a t \cdot [1-\Delta(k+k)]}) \times \\ & \times (a_{k''}^a e^{-i\omega_{k''}^a t \cdot [1-\Delta(k''-k)]} + a_{-k''}^{a*} e^{i\omega_{k''}^a t \cdot [1-\Delta(k''+k)]}) (e^{ikd} + e^{ik'd} + e^{ik''d} - \text{c.c.}) \\ & + (\omega_k^0 \omega_{k'}^0 \omega_{k''}^0)^{-1/2} (a_{k'}^0 e^{-i\omega_{k'}^0 t} + a_{-k'}^{0*} e^{i\omega_{k'}^0 t}) (a_{k''}^0 e^{-i\omega_{k''}^0 t} + a_{-k''}^{0*} e^{i\omega_{k''}^0 t}) \times \\ & \times (e^{ikd} - e^{ik'd} - e^{ik''d} - \text{c.c.})] \Delta(k+k'+k'') \end{aligned} \quad (11)$$

但しここで相互作用的な Heisenberg 表示を用いた。

(7)と(9)から  $r_k^a - i\Delta\omega_k^a$  を計算するためには  $f$  から次の形に書ける term を抽出する。

$$i\hbar \cdot (r_k^a - i\Delta\omega_k^a) a_k^{a*} = f = \langle g \rangle \cdot a_k^{a*} \quad (12)$$

$a_k^{a*}$  の抽出操作を行うためには、

$$a_{k'}^\alpha, a_{k''}^\beta, a_{-k'}^{\alpha*}, a_{-k''}^{\beta*}, a_{-k'}^{\alpha*}, a_{-k''}^{\beta*} \quad (\alpha, \beta = a \text{ or } 0)$$

の運動方程式から、これらを積分して  $f$  の表式 (11) に代入する。かくして得られた  $g$  における各 term — 2つの Boson operator の積 — の平均は次の Planck 分布を与える。

$$\langle a_{-k'}^{\alpha*} a_{k''}^\beta \rangle_T = \frac{\delta_{\alpha\beta} \cdot \Delta(k'+k'')}{e^{\beta \hbar \cdot \omega_{k'}^\alpha} - 1}, \quad \beta = \frac{1}{k_B \cdot T} \quad (13)$$

oscillatory exponents に convergence factor の無限小  $\epsilon$  ( $\epsilon > 0$ ) を考慮し、 $r_k^a - i\Delta\omega_k^a$  を算出すると結果は次のようになる。

$$r_k^a - i\Delta\omega_k^a = -\frac{\hbar}{4N} \cdot \frac{\alpha^2}{(2m)^3} \lim_{\epsilon \rightarrow +0} \lim_{t \rightarrow +\infty} \sum_{k', k''} \times$$

$$\begin{aligned}
& \times \left\{ \frac{|F^{aaa}(k, k', k'')|^2}{\omega_k^a \omega_{k'}^a \omega_{k''}^a} \cdot \left\{ \left( \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^a} - 1} + 1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^a} - 1} \right) \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a + \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'-k)) + \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''-k)) - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a + \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'-k)) + \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''-k)) - i\varepsilon)} \right. \right. \\
& + \left( \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^a} - 1} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^a} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a + \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'-k)) - \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''+k)) - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a + \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'-k)) - \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''+k)) - i\varepsilon)} \\
& + \left( -\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^a} - 1} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^a} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a - \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'+k)) + \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''-k)) - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a - \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'+k)) + \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''-k)) - i\varepsilon)} \\
& \left. + \left( -1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^a} - 1} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^a} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a - \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'+k)) - \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''+k)) - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a - \omega_{k'}^a(1-\Delta(k'+k)) - \omega_{k''}^a(1-\Delta(k''+k)) - i\varepsilon)} \right\} \\
& + \frac{|F^{a00}(k, k', k'')|^2}{\omega_k^a \omega_{k'}^0 \omega_{k''}^0} \cdot \left\{ \left( \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^0} - 1} + 1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^0} - 1} \right) \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a + \omega_{k'}^0 + \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a + \omega_{k'}^0 + \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)} \right. \\
& + \left( \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^0} - 1} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^0} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a + \omega_{k'}^0 - \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a + \omega_{k'}^0 - \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)} \\
& + \left( -\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^0} - 1} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^0} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a - \omega_{k'}^0 + \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a - \omega_{k'}^0 + \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)} \\
& \left. + \left( -1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k''}^0} - 1} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k'}^0} - 1} \right) \cdot \frac{1 - e^{-i(\omega_k^a - \omega_{k'}^0 - \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)t}}{i(\omega_k^a - \omega_{k'}^0 - \omega_{k''}^0 - i\varepsilon)} \right\} \Bigg\} \times \\
& \times \Delta(k + k' + k'')
\end{aligned} \tag{14}$$

ここで

$$F^{aaa}(k, k', k'') \equiv (1 - e^{-ikd})(1 - e^{-ik'd})(1 - e^{-ik''d}) - \text{c.c.}$$

$$F^{a00}(k, k', k'') \equiv (1 - e^{-ikd})(1 + e^{-ik'd})(1 + e^{-ik''d}) - \text{c.c.}$$

(14)式で  $\Delta(k' \pm k) = 1$ ,  $\Delta(k'' \pm k) = 1$  となる場合の term は、他の term に比べて  $1/N$  の order であるから neglect する。このとき  $r_k^a$ ,  $\omega_k^a$  の次の表式を得る。

$$r_k^a = -\frac{\pi \Pi \alpha^2}{Nm^3} \times$$



$$\begin{aligned}
 & \times \left[ \sum_{\substack{R' \neq R \\ R' \neq -2R}} \frac{(1-\cos R'd)(1-\cos R'd)\{1-\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) \delta(\omega_R^a + \omega_{R'}^a + \omega_{R+R'}^a) \right. \\
 & + \sum_{\substack{k' \neq k \\ k' \neq 0}} \frac{(1-\cos kd)(1-\cos k'd)\{1-\cos(k+k')d\}}{\omega_k^a \omega_{k'}^a \omega_{k+k'}^a} \left(-\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_k^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{k+k'}^a}}\right) \delta(\omega_k^a + \omega_{k'}^a - \omega_{k+k'}^a) \\
 & + \sum_{\substack{k' \neq -k \\ k' \neq -2k}} \frac{(1-\cos kd)(1-\cos k'd)\{1-\cos(k+R')d\}}{\omega_k^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_k^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) \delta(\omega_k^a - \omega_{R'}^a + \omega_{R+R'}^a) \\
 & + \sum_{\substack{R' \neq -R \\ R' \neq 0}} \frac{(1-\cos R'd)(1-\cos R'd)\{1-\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(-1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) \delta(\omega_R^a - \omega_{R'}^a - \omega_{R+R'}^a) \\
 & + \sum_{R'} \frac{(1-\cos R'd)(1+\cos R'd)\{1+\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^o \omega_{R+R'}^o} \left(1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^o}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^o}}\right) \delta(\omega_R^a + \omega_{R'}^o + \omega_{R+R'}^o) \\
 & + \sum_{R'} \frac{(1-\cos R'd)(1+\cos R'd)\{1+\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^o \omega_{R+R'}^o} \left(-\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^o}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^o}}\right) \delta(\omega_R^a + \omega_{R'}^o - \omega_{R+R'}^o) \\
 & + \sum_{R'} \frac{(1-\cos R'd)(1+\cos R'd)\{1+\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^o \omega_{R+R'}^o} \left(\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^o}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^o}}\right) \delta(\omega_R^a - \omega_{R'}^o + \omega_{R+R'}^o) \\
 & + \sum_{R'} \frac{(1-\cos R'd)(1+\cos R'd)\{1+\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^o \omega_{R+R'}^o} \left(-1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^o}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^o}}\right) \delta(\omega_R^a - \omega_{R'}^o - \omega_{R+R'}^o) \Big] \\
 & \quad (15)
 \end{aligned}$$

$$\Delta \omega_R^o = -\frac{\hbar \omega^2}{N m^3} \times$$

$$\begin{aligned}
 & \times \left[ \sum_{\substack{R' \neq R \\ R' \neq -2R}} \frac{(1-\cos R'd)(1-\cos R'd)\{1-\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) P\left(\frac{1}{\omega_R^a + \omega_{R'}^a + \omega_{R+R'}^a}\right) \right. \\
 & + \sum_{\substack{R' \neq R \\ R' \neq 0}} \frac{(1-\cos R'd)(1-\cos R'd)\{1-\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(-\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) P\left(\frac{1}{\omega_R^a + \omega_{R'}^a + \omega_{R+R'}^a}\right) \\
 & + \sum_{\substack{R' \neq -R \\ R' \neq 0}} \frac{(1-\cos R'd)(1-\cos R'd)\{1-\cos(R+R')d\}}{\omega_R^a \omega_{R'}^a \omega_{R+R'}^a} \left(-1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R'}^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{R+R'}^a}}\right) P\left(\frac{1}{\omega_R^a + \omega_{R'}^a + \omega_{R+R'}^a}\right) \Big]
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + \sum_{\substack{\mathbf{k}' = -\mathbf{k} \\ \mathbf{k}' \neq 0}} \frac{(1 - \cos \mathbf{k}d)(1 - \cos \mathbf{k}'d)\{1 - \cos(\mathbf{k} + \mathbf{k}')d\}}{\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^a \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^a} \left( -1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k}}^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^a}} \right) P\left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}^a - \omega_{\mathbf{k}'}^a - \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^a}\right) \\
 & + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{(1 - \cos \mathbf{k}d)(1 + \cos \mathbf{k}'d)\{1 + \cos(\mathbf{k} + \mathbf{k}')d\}}{\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^o \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o} \left( 1 + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k}}^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}} \right) P\left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}^a + \omega_{\mathbf{k}'}^o + \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}\right) \\
 & + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{(1 - \cos \mathbf{k}d)(1 + \cos \mathbf{k}'d)\{1 + \cos(\mathbf{k} + \mathbf{k}')d\}}{\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^o \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o} \left( -\frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k}}^a}} + \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}} \right) P\left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}^a + \omega_{\mathbf{k}'}^o - \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}\right) \\
 & + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{(1 - \cos \mathbf{k}d)(1 + \cos \mathbf{k}'d)\{1 + \cos(\mathbf{k} + \mathbf{k}')d\}}{\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^o \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o} \left( \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k}}^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}} \right) P\left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}^a - \omega_{\mathbf{k}'}^o + \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}\right) \\
 & + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{(1 - \cos \mathbf{k}d)(1 + \cos \mathbf{k}'d)\{1 + \cos(\mathbf{k} + \mathbf{k}')d\}}{\omega_{\mathbf{k}}^a \omega_{\mathbf{k}'}^o \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o} \left( -1 - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k}}^a}} - \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}} \right) P\left(\frac{1}{\omega_{\mathbf{k}}^a - \omega_{\mathbf{k}'}^o - \omega_{\mathbf{k} + \mathbf{k}'}^o}\right)
 \end{aligned} \tag{16}$$

以上の  $r_{\mathbf{k}}^a$  及び  $\omega_{\mathbf{k}}^a$  を求めるやり方は、統計力学の一般的立場からみれば、Brown 運動で secular part を拾い出したことに他ならぬわけで、H. Mori<sup>(10)</sup> の一般表式から摂動の近似でも上記と同じ表式が導かれることを示すのは容易である。

#### § IV Soft mode の dispersion

上で得た  $r_{\mathbf{k}}^a$ ,  $\omega_{\mathbf{k}}^a$  の温度依存性を決めるために displaced 型強誘電体固有の soft mode  $\omega_{\mathbf{T}}$  即ち  $\omega_{\mathbf{k}}^o$  を決定する。Silverman<sup>(8)</sup> では non-uniform mode は求められてなかつたので、Silverman の与えた uniform mode の表式を non-uniform mode に拡張する。小さい  $\mathbf{k}$  に対して次式を得る。

$$(\omega_{\mathbf{k}}^o)^2 = \frac{4K}{m} \cos^2 \frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{d}}{2} - \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^2 b} \left[ 1 - \frac{5}{4} d^2 \cdot k^2 \right] \tag{17}$$

$$\frac{4K}{m} \Big|_{\text{eff}} = \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^3 b} \cdot [1 + c \cdot (T - T_0)] \tag{18}$$

ここで

谷・津田

$n$  : 単位イオン当りの charge 数

$a, b$  : イオンによる分極と関連した定数

$\epsilon_0$  : 自由空間の permittivity

$c$  : 比例定数

以上 Silverman<sup>(8)</sup> と同じ notation を用いた。但しここで Heller-Marcus<sup>(7)</sup> によつて dipole-dipole interaction の  $k$  依存性が与えられているのでそれを用いた。

(18) を (17) に代入して結局次式を得る。

$$\omega_k^0 = \sqrt{G + F \cdot k^2} \quad (19)$$

$$G \equiv \xi \cdot (T - T_0), \quad \xi \equiv \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^3 \cdot b} \cdot c \quad (20)$$

$$F \equiv \zeta \left\{ 1 - \frac{c}{4} \cdot (T - T_0) \right\}, \quad \zeta \equiv \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^3 \cdot b} \cdot d^2 \quad (21)$$

$\omega_k^0$  の dispersion は, dipole-dipole interaction として next neighboring ions 間の force を考えることで代用する model で Silverman<sup>(11)</sup> が求めている。しかし  $k=0$  mode では Lorentz field を考えるのであるからして、我々は、Heller-Marcus を用いて、(19)~(21) を導いた。Cowley の neutron diffraction の実験<sup>(4)</sup> その他の実験から、 $\xi$  及び  $\zeta$  の数値を決めることも出来る。

一方、sound の acoustic mode の振動数は問題の強誘電体中での横波の音速を  $s$  として、小さい  $k$  に対して次式で与えられる。

$$\omega_k^a = s \cdot |k| \quad (22)$$

§ V  $r_k^a$  及び  $\Delta\omega_k^a$  の  $k, T$  依存性

(19), (22) を用いて (15), (16) の積分を遂行して  $r_k^a, \Delta\omega_k^a$  が求まる。

damping constant  $r_k^a$  の計算:

$$r_k^a = r_k^{(a00)} + r_k^{(aaa)} \quad (23)$$

$r_k^{(a00)}$ : a00 process よりの寄与

$r_k^{(aaa)}$ : aaa " "

(A)  $F > s^2$  即ち  $T - T_0 < \frac{4}{c} (1 - \frac{s^2}{\zeta})$  の場合

$$\begin{aligned}
 r_k^{(a00)} &= \frac{4\pi d^2 \cdot d}{m^3} \frac{1 - \cos kd}{sk} \times \\
 &\times \frac{(1 + \cos \left\{ \frac{s\sqrt{(F-s^2)F\{(F-s^2)k^2 + 4G\}} - F(F-s^2)k}{2F \cdot (F-s^2)} \cdot d \right\})}{k \cdot \sqrt{F-s^2}} \frac{(1 + \cos \left\{ \frac{s\sqrt{(F-s^2)F\{(F-s^2)k^2 + 4G\}} + F(F-s^2)k}{2F \cdot (F-s^2)} \cdot d \right\})}{\sqrt{F \cdot \{(F-s^2)k^2 + 4G\}}} \\
 &\times \left( \frac{1}{\exp \left\{ \beta \hbar \left( \frac{1}{2} \sqrt{\frac{F \cdot \{(F-s^2)k^2 + 4G\}}{F-s^2}} - \frac{1}{2} sk \right) \right\} - 1} - \frac{1}{\exp \left\{ \beta \hbar \left( \frac{1}{2} \sqrt{\frac{F \cdot \{(F-s^2)k^2 + 4G\}}{F-s^2}} + \frac{1}{2} sk \right) \right\} - 1} \right)
 \end{aligned}
 \tag{24}$$

$\beta \hbar \cdot \frac{1}{2} \sqrt{\frac{F \cdot \{(F-s^2)k^2 + 4G\}}{F-s^2}} < 1$  のとき、(24)は次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 r_k^{(a00)} &= \frac{16k_B T \cdot \alpha^2 \cdot d}{m^3} (1 - \cos kd) \cdot \frac{1}{k} \times \\
 &\times (1 + \cos \left\{ \frac{s\sqrt{(F-s^2)F\{(F-s^2)k^2 + 4G\}} - F(F-s^2)k}{2F \cdot (F-s^2)} \cdot d \right\}) \times \\
 &\times (1 + \cos \left\{ \frac{s\sqrt{(F-s^2)F\{(F-s^2)k^2 + 4G\}} + F(F-s^2)k}{2F \cdot (F-s^2)} \cdot d \right\}) \times \\
 &\times \sqrt{F-s^2} \cdot [F \cdot \{(F-s^2)k^2 + 4G\}]^{-3/2}
 \end{aligned}
 \tag{25}$$

(B)  $F < 0$ ,  $(s^2 - F)k^2 \leq \frac{-4FG}{s^2 - F}$  即ち

$$T - T_0 \geq \frac{4\zeta \{8\xi - (\zeta - s^2)ck^2\} + 16\sqrt{\xi\zeta} \{4\xi\zeta - s^2ck^2(\zeta - s^2)\}}{c \cdot \zeta \cdot (16\xi - \zeta \cdot c \cdot k^2)} \quad \text{の場合}$$

$$r_k^{(a00)} = \frac{4\pi \alpha^2 \cdot d}{m^2} \cdot \frac{1 - \cos kd}{sk} \times$$

谷・津田

$$\begin{aligned}
 & \times (1 + \cos \left\{ \frac{F(s^2 - F)k + s\sqrt{-F(s^2 - F)\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{-2F \cdot (s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
 & \times (1 + \cos \left\{ \frac{-F(s^2 - F)k + s\sqrt{-F(s^2 - F)\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{-2F \cdot (s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
 & \times \left( - \frac{1}{\exp \left\{ \beta \hbar \left( \frac{1}{2} \sqrt{\frac{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}{s^2 - F}} - \frac{1}{2} sk \right) \right\} - 1} \right. \\
 & \left. + \frac{1}{\exp \left\{ \beta \hbar \left( \frac{1}{2} \sqrt{\frac{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}{s^2 - F}} + \frac{1}{2} sk \right) \right\} - 1} \right) \times \\
 & \times \frac{-1}{k \cdot (s^2 + F)} \sqrt{\frac{s^2 - F}{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}} \quad (26)
 \end{aligned}$$

$\beta \hbar \cdot \frac{1}{2} \sqrt{\frac{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}{s^2 - F}} < 1$  のとき、(26)は次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 r_k^{(a00)} &= \frac{16k_B T \cdot \alpha^2 \cdot d}{m^2} \cdot \frac{1 - \cos kd}{k} \times \\
 & \times (1 + \cos \left\{ \frac{F(s^2 - F) + s\sqrt{-F(s^2 - F)\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{-2F(s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
 & \times (1 + \cos \left\{ \frac{-F(s^2 - F) + s\sqrt{-F(s^2 - F)\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{-2F(s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
 & \times \sqrt{s^2 - F} \cdot \{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}\}^{-3/2} \quad (27)
 \end{aligned}$$

(C)  $F < 0, 4G > (s^2 - F)k^2 \geq \frac{-4FG}{s^2 - F}$  即ち

$$\frac{4}{c} < T - T_0 \leq \frac{4\zeta \{ 8\xi - (\zeta - s^2)ck^2 \} + 16\sqrt{\xi \cdot \zeta \cdot \{ 4\xi\zeta - s^2ck^2(\zeta - s^2) \}}}{c\zeta(16\xi - \zeta ck^2)} \quad \text{の場合}$$

$$r_k^{(a00)} = \frac{4\hbar\alpha^2 \cdot d}{m^2} \cdot \frac{1 - \cos kd}{sk} \times$$

$$\begin{aligned}
& \times (1 + \cos \left\{ \frac{F(s^2 - F)k - s\sqrt{-(s^2 - F)F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{2F(s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
& \times (1 + \cos \left\{ \frac{F(s^2 - F)k + s\sqrt{-(s^2 - F)F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}}{2F(s^2 - F)} \cdot d \right\}) \times \\
& \times (1 + \frac{1}{\exp\{\beta\hbar(\frac{1}{2}sk - \frac{1}{2}\sqrt{\frac{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}{s^2 - F}})\} - 1} \\
& + \frac{1}{\exp\{\beta\hbar(\frac{1}{2}sk + \frac{1}{2}\sqrt{\frac{-F\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}}{s^2 - F}})\} - 1}) \times \\
& \times k^{-1} \times [-F(s^2 - F)\{-(s^2 - F)k^2 + 4G\}]^{-1/2} \quad (28)
\end{aligned}$$

(D)  $\frac{4}{c}(1 - \frac{s^2}{c}) \leq T - T_0 \leq \frac{4}{c}$  の場合

energy conservation を満足する processes が存在せず attenuation は起らぬ。

他方、 $r_k^{(aaa)}$  は次式で与えられる。

$$r_k^{(aaa)} = \frac{\pi k_B T \alpha^2 \cdot d^4}{4 s^5 \cdot m^3 \cdot k} (1 - \cos kd) \quad (29)$$

これは anomalous temperature dependence を示さず、又その大きさにおいても  $r_k^{(a00)}$  より 2 桁程小さい。

frequency shift  $\Delta\omega_k^a$  の計算：

$$\Delta\omega_k^a = \Delta\omega_k^{(a00)} + \Delta\omega_k^{(aaa)} \quad (30)$$

(A)  $F > 0$ , 即ち  $T - T_0 < \frac{4}{c}$  の場合

$$\Delta\omega_k^{(a00)} \approx - \frac{\sqrt{2} k_B T \cdot \alpha^2 \cdot d}{m^3} \frac{1 - \cos kd}{sk} \times$$

谷・津田

$$\times \sqrt{F} \cdot \frac{12F^2 + 38Fs^2 + 3s^4}{(F + \frac{1}{2}s^2)^3} \cdot \frac{1}{\sqrt{G} \cdot (8G + F \cdot k^2)} \quad (31)$$

(B)  $F < 0$  即ち  $T - T_0 > \frac{4}{c}$  の場合

$$\begin{aligned} \Delta \omega_k^{(a00)} = & -\frac{\hbar \alpha^2}{m^3} \cdot \frac{1 - \cos kd}{sk} \cdot \frac{4}{F + \frac{1}{2}s^2} \cdot \frac{1}{2k_0} \cdot \frac{\sqrt{G}}{8G + F \cdot k^2} \times \\ & \times \left[ 6 \sqrt{\frac{-F}{2G}} \ln \left| \frac{Fk_0 - \sqrt{-2FG}}{Fk_0 + \sqrt{-2FG}} \right| \right. \\ & + 16 \cdot \frac{F \cdot k_0}{2G + F \cdot k_0^2} \\ & + \frac{\sqrt{-F}}{\beta \hbar \cdot 2\sqrt{2}} \cdot \frac{48F^2 + 38Fs^2 + 3s^4}{(F + \frac{1}{2}s^2)^2} \cdot \frac{1}{G} \ln \left| \frac{Fk_0 - \sqrt{-2FG}}{Fk_0 + \sqrt{-2FG}} \right| \\ & + \frac{2}{\beta \hbar} \cdot \frac{20F^2 + 16Fs^2 + s^4}{(F + \frac{1}{2}s^2)^2} \cdot \frac{1}{\sqrt{G}} \cdot \frac{Fk_0}{2G + Fk_0^2} \\ & \left. + 16 \cdot \frac{F^2 s}{\beta \hbar \cdot (F + \frac{1}{2}s^2)^2} \cdot \frac{1}{G} \cdot \ln \left| \frac{s\sqrt{G} - F \cdot k_0}{s\sqrt{G} + F \cdot k_0} \right| \right] \quad (32) \end{aligned}$$

また、 $\Delta \omega_k^{(aaa)}$  は次のようになる。

$$\Delta \omega_k^{(aaa)} = -\frac{5}{8} \frac{k_B T \cdot \alpha^2 \cdot d^4}{s^5 m^3} \frac{1 - \cos kd}{k} \quad (33)$$

## § VI 得られた結果の要約と議論

damping constant  $r_k^a$  に関して

(1)  $T_0$  近傍で  $r_k^a$  の anomaly が起る。その温度依存性は  $T/(T - T_0)^{3/2}$  である。但し

$$\frac{\beta \hbar}{2} \sqrt{\frac{F \{ (F - s^2) k^2 + 4G \}}{F - s^2}} \gtrsim 1$$

をみたす 温度  $T$  では、  $r_k^a$  はむしろ  $T$  に関して指数函数的になる。 $r_k^a$  の order estimation は ; sound の frequency  $\omega_k^a = 10(\text{Mc})$ ,  $s \sim 10^6$  (cm/sec),  $k \sim 10(\text{cm}^{-1})$  と Silverman の数値<sup>(8)</sup> と、  $F \sim 10^{12}(\text{cm}^2/\text{sec}^2)$  とを用い、温度  $T = T_0 = 10(^{\circ}\text{K})$  のとき、  $r_k^a \sim 10^6(\text{sec}^{-1})$  となる。従つて acoustic phonon は  $T_0$  近傍でも十分物理的意味をもっている。

[2]  $T_0$  近傍では  $r_k^a$  は  $k$  に linear である。 $T_0$  の極く近傍になると  $r_k^a$  の  $k$ -依存性は弱まる。即ち Fig. 2 のようになる。

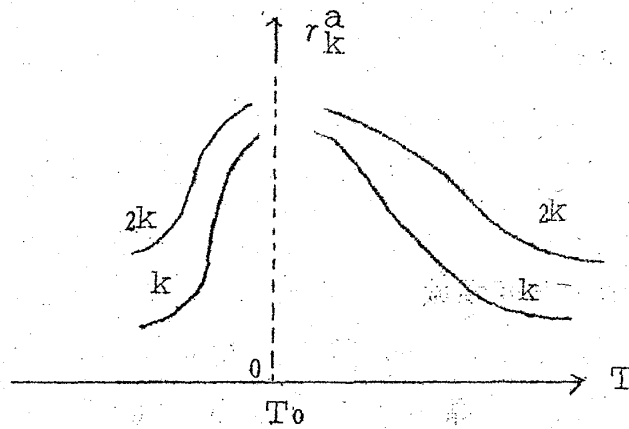


Fig. 2

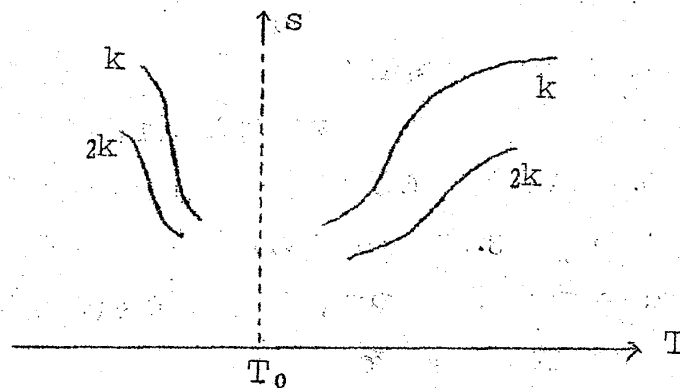


Fig. 3



[3]  $\frac{4}{c} (1 - \frac{s^2}{\epsilon}) \leq T - T_0 \leq \frac{4}{c}$  の場合は attenuation は起らない。

[4] aaa processes による  $r_k^{(aaa)}$  は、当然ながら、anomaly をもたず且つ  $r_k^{(a00)}$  よりも 2 桁程小さい。この差は主として  $F(k, k; k'')$  の構造の違いに由来する。

frequency shift  $\Delta\omega_k^a$  に関して

[5]  $T_0$  近傍で  $\Delta\omega_k^a$  の anomaly が起る。その温度依存性は  $T/(T - T_0)^{3/2}$  である。

[6]  $T_0$  近傍では  $\Delta\omega_k^a$  は  $k$  に linear である。即ち sound speed  $(\omega_k^a + \Delta\omega_k^a)/k$  に対しては、誇張して書けば、Fig.3 のようになる。

[7]  $\Delta\omega_k^a < 0$  である。従つて  $T$  が減少するにつれて、sound speed は小さくなる。

以上我々は soft mode の凍結する温度  $T_0$  と polarization の消える温度  $T_c$  を区別しなかつたが、 $T_c = T_0 + \Delta T$  ( $\Delta T > 0$ ) で  $\Delta T/T_0 \ll 1$  であるので以上求めた anomaly を示す温度領域は十分広いと考えられる。

我々は又、paraelectric phase  $T_0 < T$  にのみ話を限つて来たが、ferroelectric phase では、結晶が cubic から tetragonal phase に変型して、新しい平衡点のまわりで、格子振動が行われる。そのとき、例えば(1)式の  $x_{2j+1}^2 u_{2j}$  の係数即ちバネ定数  $\alpha$  は、4 次のバネ定数を  $\beta$  として、 $\alpha - 3\beta\delta_{2j+1} + 3\beta\epsilon_{2j}$  となる。但し  $\delta_{2j+1}$ ,  $\epsilon_{2j}$  は夫々 0 及び  $T_i$  の cubic 及び tetragonal phase における平衡位置の差である。spontaneous polarization を実測値に合わせて得た Cowley の計算値は、 $\text{SrTiO}_3$  については  $\delta_{2j+1} \sim -0.04\text{\AA}$ ,  $\epsilon_{2j} \sim 0.025\text{\AA}$  程度であるから、 $\beta \sim 1.93 \times 10^{20} (\text{erg}/\text{cm}^4)$  を代入すると、 $-3\beta\delta_{2j+1} + 3\beta\epsilon_{2j} \sim 3.77 \times 10^{11} (\text{erg}/\text{cm}^3)$  となる。一方  $\alpha \sim 2.82 \times 10^{12} (\text{erg}/\text{cm}^3)$  の order である。依つて、 $T < T_0$  でも(1)式の Hamiltonian を採用してよい。従つて本質的には  $\omega_k^0$  を

$$\omega_k^0 = \sqrt{G + F \cdot k^2}$$

$$G \equiv \xi_{\pm} \cdot |T - T_0|, \quad \xi_{\pm} \equiv \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^3 \cdot b} \cdot c_{\pm}$$

$$F \equiv \zeta \left\{ 1 - \frac{c_{\pm}}{4} |T - T_0| \right\}, \quad \zeta = \frac{(ne)^2 a}{2\epsilon_0 m d^3 \cdot b} \cdot d^2$$

$c_+$  と  $c_-$  はそれぞれ  $T > T_0$  と  $T < T_0$  に対応する。  $c_- = 4c_+$

とすれば、我々の得た表式 (24), (31) はそのまま  $T < T_0$  にも適用する。得られた結果を Fig. 2 と Fig. 3 に示した。damping constant については、order-disorder 型強誘電体ではあるが、K. Baranskiĭ et al. の Rochelle 塩の実験<sup>(12)</sup>に、Fig. 2 と同様の傾向がみられる。また sound speed の Fig. 3 と似た振舞いは、Shuvalov-Minaeva の antiferroelectrics  $\text{PbMg}_{1/2}\text{W}_{1/2}\text{O}_3$  についての実験<sup>(13)</sup>にみられる。

以上、 $T_0$  近傍の sound wave の振舞いを discuss したので、 $\omega_k^0 = \sqrt{G + F \cdot k^2}$  であり、(A) の  $F > s^2$  なる場合を、Fig. 2, 3 に図示した。 $F < 0$  の場合は、 $T_0$  よりずつと高温の、むしろ optical mode が soft でない、通常の場合、或いはそれに近い場合に相当する。場合(C)をみたす温度範囲は practical にはない。

本稿では sound wave の damping constant を求めたが、 $\text{SrTiO}_3$  に対する Cowley の neutron の実験<sup>(14)</sup>によると、soft mode の damping constant は、 $T$  が高温から  $T_0$  に近づくにつれて、小さくなっている。この  $T$  の増加と共に大きくなる damping constant の振舞いは、 $s^2 < F$  で且つ  $s^2 \sim F$  であれば、理論的に導くことが出来る。<sup>(15)</sup>

$T_0$  近傍で sound attenuation に anomaly が起るためには  $s^2 < F$  が必要であつた。 $\text{SrTiO}_3$  に対する Cowley<sup>(4)</sup> の実験 data を解析すれば、どの  $k$  で estimate するかによつて  $F$  の値が少し異なるが、 $s^2 < F$  が成立しているように思われる。従つて我々の得た sound attenuation の anomaly が実験的に観測されてもよいだろう。又、Silverman model が混晶系  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  の microwave losses の実験事実を説明したことから、この議論は  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  に対してもあてはまるだろう。現在までのところ、order-

谷・津田

disorder 型強誘電体については sound attenuation の実験<sup>(12)</sup>はいくつかあるが、displced 型強誘電体については我々の知る限りない。

実験家の方にいろいろ御教示戴ければ有難い。

この問題に興味を持って下さり御鞭撻下さった山本常信先生、興味を持って戴いた松原先生及び森先生に感謝します。

#### References

- 1) W. Cochran, Phys. Rev. Letters 3 (1959) 412
- 2) T. Kurosawa, J. Phys. Soc. Japan 16 (1961) 1298
- 3) A. S. Barker, Jr and M. Tinkham, Phys. Rev. 125 (1962) 1527
- 4) R. A. Cowley, Phys. Rev. Letters 9 (1962) 159
- 5) J. M. Ballantyne, Phys. Rev. 136 (1964) A429
- 6) P. W. Anderson, *Физика диэлектриков* АН СССР (1960) 290
- 7) W. R. Heller and A. Marcus, Phys. Rev. 84 (1951) 809
- 8) B. D. Silverman, Phys. Rev. 125 (1962) 1921
- 9) G. Rupprecht and R. O. Bell, Phys. Rev. 125 (1962) 1915
- 10) H. Mori, Prog. Theor. Phys. 33 (1965) 423
- 11) B. D. Silverman, Phys. Rev. 135 (1964) A1596
- 12) K. N. Baranskiĭ, O. A. Shustin, T. S. Velichkina and I. A. Yakovlev, Soviet Phys. JETP 16 (1963) 518
- 13) L. A. Shuvalov and K. A. Minaeva, Soviet Phys.—Doklady 7 (1963) 906
- 14) R. A. Cowley, Phys. Rev. 134 (1964) A981